

# PENGARUH SINTERING BERULANG TERHADAP STRUKTUR KRISTAL DAN MORFOLOGI PERMUKAAN Bi, Pb-Sr-Ca-Cu-O YANG DIDOPING Mg

## THE EFFECT OF RECURRENT SINTERING ON CRYSTALLIZED AND MORPHOLOGICAL STRUCTURES Bi, Pb-Sr-Ca-Cu-O DOPED Mg

Fauzan Amri<sup>1,\*</sup>, Bintoro Siswayanti<sup>2</sup>, Sigit Dwi Yudanto<sup>2</sup>, Agung Imaduddin<sup>2</sup>, Nurul Suhada<sup>1</sup>, Rizki Syahfina<sup>1</sup>, dan Eidi Sihombing<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Jurusan Fisika, Universitas Negeri Medan, Jalan Willem Iskandar Psr. V Medan Estate Sumatera Utara, Indonesia

<sup>2</sup>Pusat Penelitian Metalurgi dan Material, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia, Gedung 470 Kawasan Puspiptek-Serpong, Tangerang Selatan, Indonesia

\*E-mail: fauzannamri@gmail.com

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received date:

2 August 2017

Received in revised form date:

29 August 2018

Accepted date:

4 September 2018

Available online date:

31 November 2018

### Abstract

The synthesis of the superconducting pellets of  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.8}\text{Mg}_{0.2}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  has been conducted using the solid method and repeated sintering process. The samples were analyzed using XRD (X-ray Diffractometer) and SEM-EDS (Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive Spectroscopy). Based on XRD analysis results, the obtained phase is (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212,  $\text{CaPbO}_3$ ,  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ , and MgO. Recurrent sintering treatment of BPSCCO doping Mg test specimens increase the volume fraction (Bi,Pb)-2223 from 37% to 68%. Based on SEM analysis, the surface area of porosity at the surface of the test object is 4,742%. As for repeated sintering treatment resulted in a decrease of porosity from 4.742% to 2.132% to 1.589% for sintering test 1 times, 2 times, and 3 times. The grain shape is also increasingly more uniform as a result of the repeated sintering treatment given to the sample.

**Keywords:** BPSCCO, Doping Mg, Volume fraksi of (Bi,Pb)-2223, Porosity, Recurrent sintering

### Kata kunci:

BPSCCO

Doping Mg

Fraksi volume (Bi,Pb)-2223

Porositas

Sintering berulang

### Abstrak

Telah dilakukan sintesis pelet superkonduktor  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.8}\text{Mg}_{0.2}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  menggunakan metode padatan dan proses *sintering* berulang. Benda uji yang dibuat dianalisis dengan menggunakan XRD (X-ray Diffractometer) dan SEM-EDS (Scanning Elektron Microscopy-Energy Dispersive Spectroscopy). Berdasarkan analisis XRD, fase yang terbentuk adalah (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212,  $\text{CaPbO}_3$ ,  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ , dan MgO. Perlakuan *sintering* berulang pada benda uji BPSCCO *doping* Mg dapat meningkatkan fraksi volume (Bi,Pb)-2223 dari 37% menjadi 68%. Berdasarkan analisis SEM, didapatkan luas porositas pada morfologi permukaan benda uji sebesar 4,742%. Adapun dengan perlakuan *sintering* berulang menyebabkan terjadinya penurunan luas porositas dari 4,742% menjadi 2,132% hingga 1,589% untuk benda uji *sintering* 1 kali, 2 kali, dan 3 kali. Bentuk butir juga semakin lebih seragam akibat dari perlakuan *sintering* berulang yang diberikan pada sampel.

## PENDAHULUAN

Sejak penemuan superkonduktor tipe oksida Cu yang memiliki suhu kritis tinggi pada tahun 1986, penelitian untuk aplikasi superkonduktor menjadi semakin gencar dilakukan. Salah satu superkonduktor tipe oksida adalah superkonduktor BPSCCO. Saat ini, superkonduktor BPSCCO memiliki suhu kritis sebesar 110 K (Cardwell and Ginley 2003; Poole et al. 2007). Dengan suhu kritis yang tinggi, superkonduktor BPSCCO banyak digunakan sebagai aplikasi di bidang energi, transportasi, dan kesehatan.

Permasalahan yang timbul pada superkonduktor sistem BPSCCO saat ini adalah kerapuhan materialnya, susunan yang berlapis menyebabkan material ini sulit diberi perlakuan yang keras. Untuk itu diperlukan material lain guna memperbaiki sifat ketangguhan patah BPSCCO.

Penambahan oksida nano dapat meningkatkan kekuatan sambungan antar butir untuk mengatasi sifat rapuhnya. Di samping itu, oksida nano juga berperan meningkatkan *flux-pinning* di batas butir, sehingga kapasitas arus kritis superkonduktor juga meningkat (Roumie et al. 2014).

Salah satu jenis senyawa oksida adalah MgO. Senyawa MgO dinilai mampu menjadi *doping* untuk memperbaiki kerapatan butir BPSCCO karena memiliki sifat mekanik dan titik lebur yang tinggi.

Penelitian Dou dkk. berhasil menciptakan superkonduktor BPSCCO *doping* MgO dengan sifat mekanik yang lebih baik. Hal ini dibuktikan dengan terbentuknya keselarasan kristal yang baik pada struktur morfologinya (Dou et al. 1989).

Meningkatnya sifat mekanik superkonduktor BPSCCO *doping* Mg ternyata tidak seiring dengan peningkatan suhu kritisnya. Penambahan *doping* MgO pada sistem superkonduktor BPSCCO justru menyebabkan penurunan suhu kritis pada

sampel. Kocabas melaporkan penambahan  $\text{MgO} > 0,1$  mol menyebabkan penurunan temperatur kritis dan memperlambat pembentukan fasa (Bi,Pb)-2223 (Kocabas et al. 2010). Demikian juga penambahan 0,2 mol Mg dapat menurunkan temperatur kritis BPSCCO sekaligus menurunkan fraksi volume (Bi,Pb)-2223 (Hawa et al. 2012). Oleh karena itu, diperlukan cara lain untuk dapat meningkatkan sifat mekanik BPSCCO sekaligus meningkatkan suhu kritis sampel.

Abbas dkk. melakukan inovasi dengan melakukan percobaan pada sampel BPSCCO *doping* Li dengan perlakuan *sintering* berulang. Pengulangan *sintering* dimaksudkan untuk meningkatkan kerapatan benda uji sesuai dengan struktur mikro dan komposisi fase yang diinginkan. Pada penelitian Abbas, telah dilakukan percobaan dengan menyintesis superkonduktor  $\text{Bi}_{2-x}\text{Li}_x\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  ( $0 \leq x \leq 0,5$ ) melalui perlakuan *sintering* berulang hingga tiga kali. Hasil analisis menunjukkan temperatur kritis tertinggi dapat dicapai hingga 130 K (Abbas, Oboudi, and Raoof 2015).

Penelitian ini menjelaskan pengaruh *sintering* berulang terhadap pembentukan fasa (Bi,Pb)-2223 pada BPSCCO yang di-*doping* dengan Mg dan mengetahui tingkat porositas pada morfologi benda uji.

## METODE

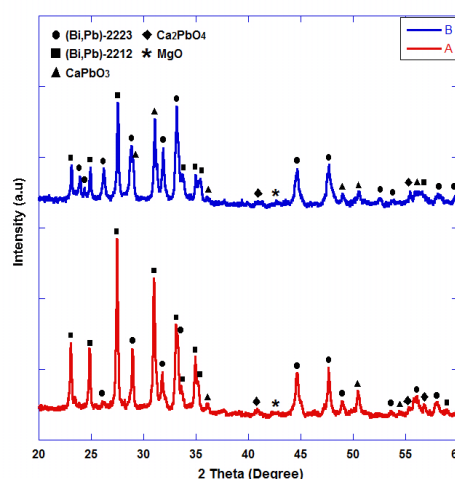
Bahan dasar yang digunakan terdiri atas bahan oksida dan karbonat dengan tingkat kemurnian yang tinggi, yaitu:  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  (98%),  $\text{SrCO}_3$  (96%),  $\text{CaCO}_3$  (98,5%),  $\text{CuO}$  (99%),  $\text{PbO}_2$  (97%), dan  $\text{MgO}$  (97%). Adapun prosedur pelaksanaan penelitian menggunakan metode padatan dengan proses *sintering* berulang pada suhu  $850^\circ\text{C}$  selama 30 jam.

Langkah awal dilakukan penimbangan bahan sesuai persamaan stoikiometri berikut, yaitu  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_{1.8}\text{Mg}_{0.2}\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  dengan komposisi bahan MgO sebesar 0,677% berat. Kemudian, benda uji digerus selama 3 jam dengan menggunakan mortar agate. Benda uji kemudian dipanaskan pada suhu 300°C selama 8 jam. Setelah dipanaskan, selanjutnya benda uji digerus kembali selama 6 jam. Kemudian, benda uji dikalsinasi pada suhu 820°C selama 20 jam dengan kenaikan suhu 5°C/menit. Selanjutnya, benda uji dikompaksi dengan tekanan ~379 MPa berdiameter 12 mm. Lalu, dilakukan proses *sintering* pada suhu 850°C selama 30 jam dengan kenaikan suhu 5°C/menit. Untuk benda uji kedua dan ketiga dilakukan penggerusan, peletisasi, dan *sintering* kembali pada suhu 850°C selama 30 jam. Karakterisasi dilakukan dengan XRD (X-ray diffractometer) tipe PANalytical Empyrean dan SEM-EDS merk JEOL-6390A

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Pengujian XRD

Untuk mengidentifikasi fasa pada benda uji BPSCCO *doping* Mg dilakukan pengujian fasa menggunakan XRD. Melalui pengujian ini diperoleh fasa yang terbentuk dan fraksi volume dari benda uji. Data yang diperoleh dianalisis dengan menggunakan *software* Match v1.10 sesuai dengan database *International Centre for Diffraction Data* (ICDD) edisi tahun 2003. Hasil analisis XRD dapat dilihat pada Gambar 1 berikut ini.



**Gambar 1.** Pola difraksi benda uji BPSCMgCO (a) BPSCMgCO 1 x *sintering* dan (b) BPSCMgCO 2 x *sintering*

Pada pola difraksi Gambar 1 (a) terlihat pembentukan fasa (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212,  $\text{CaPbO}_3$ ,  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ , dan MgO. Fasa  $\text{CaPbO}_3$  dan  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$  merupakan fasa impuritas. Pola difraksi Gambar 1 (b) juga didapatkan pembentukan fasa yang sama, yakni (Bi,Pb)-2223, (Bi,Pb)-2212,  $\text{CaPbO}_3$ ,  $\text{Ca}_2\text{PbO}_4$ , dan MgO.

Hanya saja, pada sudut  $2\theta = 33,07^\circ$ , Gambar 1 (a) teridentifikasi fasa (Bi,Pb)-2212 yang kemudian pada pola difraksi Gambar 1 (b), puncak tersebut menghilang dan terjadi pergeseran puncak menjadi  $2\theta = 33,12^\circ$  dengan fasa yang teridentifikasi adalah fasa (Bi,Pb)-2223.

Fasa (Bi,Pb)-2223 yang terbentuk memiliki intensitas yang lebih tinggi daripada fasa (Bi,Pb)-2223 sebelumnya, yaitu sebesar 2670,56 cts dengan pergeseran puncak sebesar  $0,11^\circ$  ke arah kiri. Sementara, intensitas fasa (Bi,Pb)-2212 mengalami penurunan intensitas menjadi 2686,66 cts

dengan pergeseran puncak sebesar  $0,11^\circ$  ke arah kanan. Meningkatkan intensitas (Bi,Pb)-2223 dan berkurangnya intensitas (Bi,Pb)-2212 berpengaruh terhadap nilai fraksi volumenya.

Untuk mengetahui nilai fraksi volume Bi-2223 dan Bi-2212 pada benda uji dapat

digunakan persamaan 1 dan 2 berikut ini (Hawa et al. 2012).

$$Bi - 2223 (\%) = \frac{\sum I_{2223}}{\sum I_{2223} + \sum I_{2212}} \times 100\% \quad (1)$$

$$Bi - 2212 (\%) = \frac{\sum I_{2212}}{\sum I_{2223} + \sum I_{2212}} \times 100\% \quad (2)$$

**Tabel 1.** Fraksi volume dan pembentukan fase sudut  $2\theta$  pada sampel BPSCMgCO

Benda Uji	Proses Sintering (850°C, 30 jam)	Fraksi Volume (%)		2 $\theta$ (Degree)/ Intensitas (cts)			
		Bi-2223	Bi-2223	2 $\theta$ = 27,43	2 $\theta$ = 27,50	2 $\theta$ = 33,12	2 $\theta$ = 33,23
BPSCMgCO	1 kali	37	63	Fase yang terbentuk: (Bi,Pb)-2212 Intensitas: 4771,14	-	-	Fase yang terbentuk: (Bi,Pb)-2223 Intensitas: 2120,56
BPSCMgCO	2 kali	68	23	-	Fase yang terbentuk: (Bi,Pb)-2212 Intensitas: 2686,66	Fase yang terbentuk: (Bi,Pb)-2223 Intensitas: 2670,56	-

Meski pada hasil yang diperoleh penelitian terdahulu penambahan Mg 0,2 mol atau lebih besar dari 0,4% berat menyebabkan perubahan fase yang memburuk pada sistem (Bi,Pb)-2223 akibat pergeseran *doping* ion  $Ca^{2+}$  oleh ion  $Mg^{2+}$  (Hawa et al. 2012; Roumie et al. 2014), tetapi penelitian ini menunjukkan bahwa pengaruh *sintering* berulang mampu berkompetisi mengatasi efek buruk tersebut terbukti dengan adanya peningkatan fraksi volume-2223. Peningkatan fraksi volume fasa (Bi,Pb)-2223 menunjukkan pembentukan sistem (Bi,Pb)-2223 yang baik (Hamadneh, Halim, and Lee 2006).

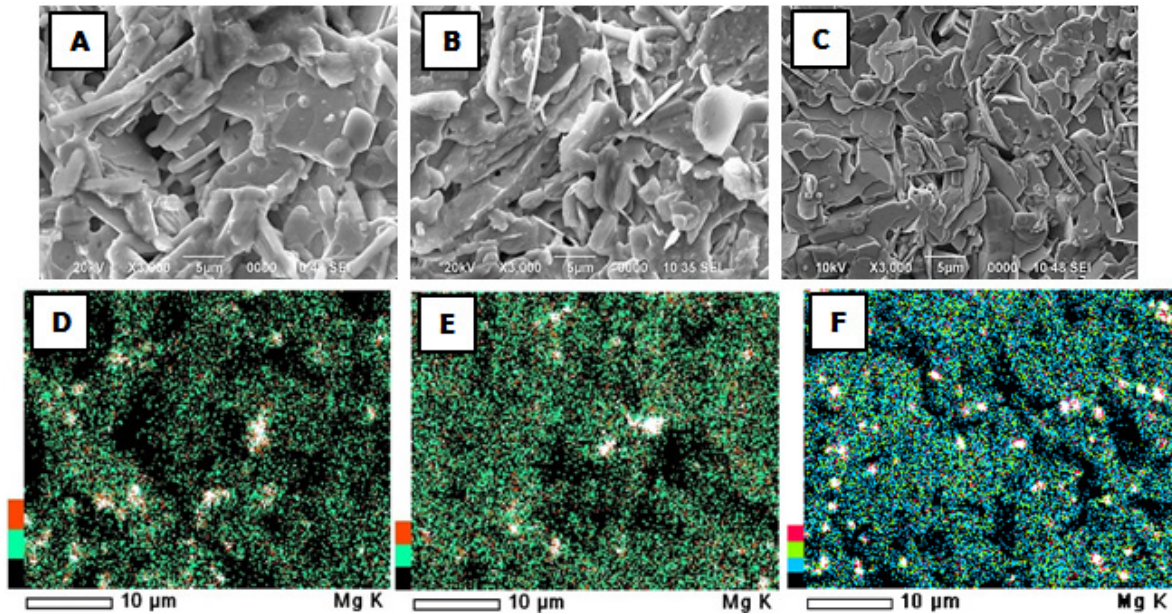
Impuritas senyawa Ca tetap muncul di *sintering* kedua dimungkinkan karena kedudukan ion Ca tergantikan oleh ion Mg (Hawa et al. 2012).

Sistem kristal (Bi,Pb)-2223 yang diperoleh dari pola difraksi Gambar 1 adalah orthorombik dengan parameter kisi  $a = 5,4056 \text{ \AA}$ ,  $b = 5,4055 \text{ \AA}$ , dan  $c = 37,12 \text{ \AA}$  (Dong et al. 2016).

### Pengujian SEM-EDS

Pengamatan morfologi mikrostruktur benda uji BPSCCO *doping* Mg dilakukan dengan menggunakan *Scanning Elektron Mikroskop* (SEM). Pengambilan gambar benda uji oleh SEM dilakukan dengan menembakkan elektron pada satu titik untuk melihat morfologi benda uji dengan perbesaran 3000x. Perhitungan porositas dari benda uji dilakukan dengan menggunakan bantuan *software ImageJ*.





**Gambar 2.** Morfologi benda uji superkonduktor dan mapping unsur Mg dengan perbesaran 3000x (a dan d) BPSCCO+MgO 1 x *sintering*, (b dan e) BPSCCO+MgO 2 x *sintering*, (c dan f) BPSCCO+MgO 3 x *sintering*

Gambar 2 menunjukkan hasil SEM benda uji dengan perlakuan *sintering* satu kali, dua kali, dan tiga kali. Pengulangan *sintering* berulang pada benda uji menyebabkan perubahan ukuran keping butir yang semakin mengecil. Hal tersebut dapat dijelaskan bahwasanya sebagian  $Mg^{2+}$  tertahan di batas butir (Roumie et al. 2014) dan kelebihanannya mampu berdifusi ke dalam fasa (Bi,Pb)-2223 mensubstitusi  $Ca^{2+}$  (Hawa et al. 2012). Ion  $Mg^{2+}$  memiliki keelektronegatifan yang lebih besar daripada ion  $Ca^{2+}$  dalam unit sel, sehingga mampu meningkatkan lebih banyak oksigen masuk ke dalam material. Difusi oksigen menuju unit sel dalam butiran perlu melintasi batas butir, sehingga memungkinkan konsentrasi oksigen di batas butir lebih tinggi daripada dalam butir. Batas butir yang lebih ter-*doping* tersebut berdampak pada pengurangan kopling intergranular sehingga memperlemah tautan pada bahan tersubstitusi (Hawa et al. 2012). Penurunan ukuran butir ini dilaporkan dapat meningkatkan arus kritis benda uji (Winatapura et al. 2012)

Pengulangan *sintering* ketiga menghasilkan struktur mikro dengan tekstur yang lebih baik dan lebih rapat. Butiran yang dihasilkan berbentuk keping kecil yang berlapis dengan pola yang lebih seragam. Homogenitas sampel juga terlihat lebih baik dengan porositas yang sedikit. Hasil ini terlihat lebih baik bila dibandingkan dengan kedua benda uji yang disinter satu atau pun dua kali. Pengulangan *sintering* tersebut menghasilkan peningkatan keselarasan morfologi kristal. Keselarasan ini berpengaruh baik pada kekuatan mekanik bahan (Dou et al. 1989).

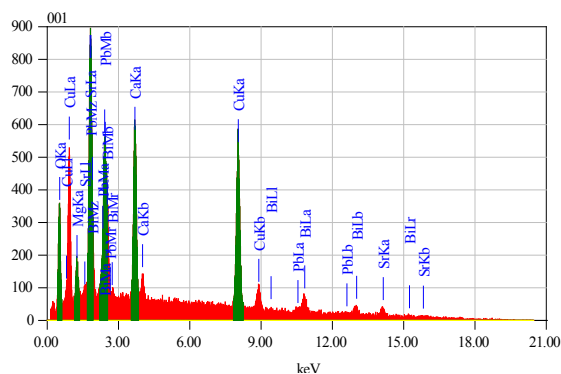
Dengan menggunakan bantuan *software ImageJ* didapatkan persentase luas porositas untuk setiap benda uji yang ditunjukkan pada Tabel 2 berikut ini.

**Tabel 2.** Luas porositas benda uji BPSCMgCO

No	Benda Uji	Proses Sintering (850°C, 30 jam)	Persentase Luas Porositas (%)
1	BPSCCO+MgO	1 kali	4,742
2	BPSCCO+MgO	2 kali	2,132
3	BPSCCO+MgO	3 kali	1,589

Pada Tabel 2 terlihat bahwa persentase luas porositas berkurang seiring dengan banyaknya perlakuan *sintering* yang diberikan. Benda uji yang di-*sintering* 3 kali memiliki persentase luas porositas yang paling kecil, sehingga, bisa dipastikan, benda uji hasil *sintering* 3 kali memiliki sifat ketangguhan patah yang lebih besar daripada benda uji yang lain.

Dengan analisis EDS terlihat bahwa unsur Mg tersisa sekitar 3,82% atom bersama unsur lainnya pada sampel BPSCMgCO yang di-*sintering* satu kali. Dengan ditambahkannya MgO ke dalam fase superkonduktor dapat memperbaiki sifat ketangguhan patah superkonduktor BPSCCO (Dou et al. 1989). Berikut ini ditampilkan persentase persebaran unsur hasil pengujian menggunakan EDS.



**Gambar 3.** Grafik analisa kuantitatif persebaran unsur BPSCMgCO 1x *sintering*

**Tabel 3.** Persentase atom penyusun BPSCMgCO

No	Unsur	% Atom
1	O	32,64
2	Mg	3,82
3	Ca	12,65
4	Cu	33,84
5	Sr	10,62
6	Pb	1,46
7	Bi	4,97

## KESIMPULAN

Proses *sintering* berulang memberikan pengaruh yang cukup signifikan terhadap fasa dan porositas benda uji BPSCCO. Berdasarkan analisis XRD, terjadi peningkatan fraksi volume (Bi,Pb)-2223 dari 37% menjadi 68%. Berdasarkan analisis SEM, *sintering* berulang pada benda uji BPSCCO yang di-*doping* MgO memperkecil ukuran butir dan menurunkan luas porositas dari 4,742% menjadi 2,132% hingga 1,589% untuk benda uji *sintering* 1 kali, 2 kali, dan 3 kali.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia (LIPI) yang telah mendanai penelitian ini melalui Program Unggulan LIPI tahun 2017 dan juga kepada dosen dan peneliti LIPI yang telah membantu penulis dalam penyusunan jurnal ini.

## DAFTAR ACUAN

- Abbas, Muna Musa, Saad Frhan Oboudi, and Nadein Qahtan Raoof. 2015. "Investigating the Preparation Conditions on Superconducting Properties of Bi<sub>2</sub>-X LixPb<sub>0.3</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10+δ</sub>." *Materials Sciences and Applications* 6 (4): 310–21.
- Cardwell, David A, and David S Ginley. 2003. *Handbook of Superconducting Materials*. London: Institute of Physics Publishing.
- Dong, Yan, Aimin Sun, Hongtao Zhang, Meng Zhang, and Bin Xu. 2016. "The Effect of Sn Substitution of Pb on Microstructure and Superconducting Properties of Bi – Pb – Sr – Ca – Cu – O Superconductor." *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 29. *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*: 2765–69.

- Dou, S x, H K Liu, S J Guo, K E Easterling, and Mikael J. 1989. "Superconductivity in the Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O System With Oxide Additions." *Superconductor Science and Technology* 274: 274–78.
- Hamadneh, I, S A Halim, and C K Lee. 2006. "Superconductor Prepared Via Coprecipitation Method at Different Sintering Time." *Journal Materials and Science* 41: 5526–30.
- Hawa, J S, H Azhan, S Y Yahya, K Azman, and H N Hidayah. 2012. "Influence of Na , Mg and Yb Substitution for Ca in Bi (Pb)-2223 Superconductor." *Advanced Materials Research* 501: 289–93.
- Kocabas, Kemal, Oya Özkan, Ozlem Bilgili, Yelda Kadioglu, and Hatice Yılmaz. 2010. "The Effects of Mg Substitution in Bi-2223 Superconductors." *Superconductor Novel and Magnetisme* 23: 1485–92.
- Poole, C. P. Jr., H. a. Farach, R. J. Creswick, and R. Prozorov. 2007. *Superconductivity*. Elsevier Ltd.
- Roumie, M, S Marhaba, R Awad, M Kork, Hassan I, and Mawassi R. 2014. "Effect of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Nano-Oxide Addition on the Superconducting Properties of the (Bi,Pb)-2223 Phase." *Superconductor Novel and Magnetisme* 27: 143–53.
- Winatapura, Didin S, M P Yustinus, A Wisnua, and Deswita E Sukirman. 2012. "Sifat Listrik Superkonduktor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-X</sub> Hasil Proses Pelelehan Dengan Dopant Ti." *Majalah Metalurgi*, no. 27: 35–42.

